基于 Geant4 模拟的 ^{41}Ar β-γ符合探测器研究

冯亚洁[1,2] 张瑞芹[2] 牛亚洲[2] 李奇[2] 佟立丽[1,*] 王世联[2,*] 赵允刚[2]
樊元庆[2] 张新军[2]
1（上海交通大学 机械与动力工程学院，上海 200240）
2（禁核试北京国家数据中心和北京放射性核素实验室，北京 100085）

摘要 ^{41}Ar 是反应堆和加速器运行释放到环境中的主要放射性核素之一，具有半衰期短的特点。由于β-γ符合法能显著降低本底、提高探测器灵敏度，为了实现 ^{41}Ar 高灵敏度测量，设计了由 BC404 和 CsI(Tl)组成的β-γ符合闪烁体探测器，并建立了以最小可探测活度浓度（Minimum Detectable Activity Concentration，MDC）为优化目标的探测器结构优化方法。首先，运用 Geant4 对β射线在 CsI(Tl)中的泄漏率进行模拟，选择 BC404 厚度为 3 mm，此时泄漏率为 0.73%；其次，对不同的气体腔尺寸进行模拟，分析计算β探测效率、γ峰效率、气体腔体积和取样时间对 MDC 的综合影响，完成探测器的结构优化；最后，分析了本底计数率和测量时间对 MDC 的影响。当测量时间为 200 分钟、处理时间为 30 分钟、本底计数率为 5×10^{-3} cps 时，优化后的探测器对 ^{41}Ar 的 MDC 估算值为 1.7 Bq/m^3。

关键词 Geant4，^{41}Ar，β-γ符合，闪烁体，最小可探测活度浓度
中图分类号 TL812+.1

Geant4 simulation study of β-γ coincidence detector for ^{41}Ar measurement

FENG Yajie[1,2] ZHANG Ruiqin[2] NIU Yazhou[2] LI Qi[2] TONG Lili[1,*] WANG Shilian[2,*]
ZHAO Yungang[2] FAN Yuanqing[2] ZHANG Xinjun[2]
1(*School of Mechanical Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China*)
2(*CTBT Beijing National Data Centre and Beijing Radionuclide Laboratory, Beijing 100085, China*)

Abstract **[Background]** As one of the main radionuclides released into the environment by the operation of reactors and accelerators, the measurement of ^{41}Ar activity concentration is of great significance for ensuring public health. In the field of radioactive gas measurement, the β-γ coincidence method is widely used because it can significantly reduce the background and improve the sensitivity of the detector. However, at present, there is little study on β-γ coincidence detectors for ^{41}Ar measurement. **[Purpose]** In order to realize high sensitivity measurement of ^{41}Ar, a detector composed of plastic scintillator and CsI(Tl) scintillator is designed, and an optimization method of detector structure based on minimum detectable activity concentration (MDC) is proposed. **[Methods]** The optimization process of the detector is realized based on Geant4 simulation. Firstly, the energy deposition of β-rays in CsI(Tl) with different thicknesses of BC404 was simulated. Secondly, the peak efficiency of 1293.6 keV γ-ray in CsI(Tl) scintillator with different thicknesses was simulated. Thirdly, assuming that the sampling time of argon is

国家自然科学基金 (D11975109) 资助
第一作者：冯亚洁，女，1994 年出生，2016 年毕业于河南科技大学，现为硕士研究生，核科学与核技术工程专业
通信作者：佟立丽，E-mail：lltong@sjtu.edu.cn；王世联，E-mail：shilian.wang@nrl.org.cn
收稿日期：2024-06-00，修回日期：2024-06-00
Supported by National Natural Science Foundation of China (D11975109)
First author: FENG Yajie, female, born in 1994, graduated from Henan University of Science and Technology in 2016, master student, major in nuclear science and nuclear technology engineering
Corresponding author: TONG Lili, E-mail: lltong@sjtu.edu.cn; WANG Shilian, E-mail: shilian.wang@nrl.org.cn
Received date: 2024-06-00 , revised date: 2024-06-00

proportional to the volume of the detector's gas chamber, by simulating with different gas chamber volume, the comprehensive effects of β detection efficiency, γ peak efficiency, gas chamber volume and sampling time on MDC were analyzed. Finally, the influence of measurement time on MDC under different background counting rates was analyzed. **[Results]** It is concluded that the particle number percentage of the energy deposited by ^{41}Ar decay β-rays in CsI(Tl) is about 0.74% when the thickness of BC404 is 3 mm. The γ peak efficiency increases with the increase of CsI(Tl) scintillator thickness. With the argon sampling rate of 600 mL/h, the optimal detector size parameters that minimize MDC are completely determined. When the background count rate is 1×10^{-3}~1 cps, the recommended measurement time for ^{41}Ar is about 200 minutes. **[Conclusions]** When the measurement time is 200 minutes, the sample cooling time is 30 minutes and the background count rate is 5×10^{-3} cps, the MDC of the optimized β-γ coincidence detector for ^{41}Ar measurement is about 1.7 Bq/m^3.

Key words Geant4, ^{41}Ar, β-γ coincidence, Scintillator, MDC

氩气是地球大气中含量第三丰富的气体，约占地球大气总含量的 0.934%，氩最常见的同位素 ^{40}Ar 丰度为 99.6%，^{40}Ar 可以通过（n，γ）反应被中子活化为放射性核素 ^{41}Ar[1]。^{41}Ar 是反应堆设施中最重要的中子活化产物之一，也是反应堆和加速器运行释放到环境中的主要气态放射性核素之一，开展高灵敏 ^{41}Ar 测量技术研究对确保公众健康具有重要意义[2–6]。

^{41}Ar 是β^-衰变核素，其半衰期为 109.34 分钟，β射线主要分支发射几率为 99.1%，最大能量为 1197.99 keV，同时伴随级联衰变的γ射线，能量为 1293.61 keV[7]。目前，测量 ^{41}Ar 活度常使用的探测器有：气体探测器、半导体探测器、闪烁体探测器和β-γ符合探测器。

气体探测器通过收集射线在气体中产生的电离电荷来测量核辐射，常用于 ^{41}Ar 测量的探测器有盖革-米勒(Geiger-Müller，G-M)计数管和电离室[8–11]。G-M 计数管具有探测灵敏度高的优点，但是 G-M 计数管不能测量入射粒子的能量，无法分辨核素类型。电离室虽然可以测量入射粒子能量，但由于β射线是连续的，电离室法同样难以识别核素类型。

半导体探测器和闪烁体探测器通过测量 ^{41}Ar 衰变产生的γ射线计数率，计算得到 ^{41}Ar 的活度。高纯锗（High Purity Germanium，HPGe）探测器具有能量分辨率高的特点，是 ^{41}Ar 测量中最常用的半导体探测器[5,12,13]。闪烁体探测器虽然能量分辨率不如 HPGe，但是具有便携、工艺简单、环境适用性强等优点。近年来，一些研究人员使用 NaI(Tl)或 CsI(Tl)探测器对核设施或周围环境中的 ^{41}Ar 剂量率进行了测量[1,14]。2020 年，Li 等研制了一种基于 NaI(Tl)探测器的放射性气体监测系统，测量时间为 10000 s 时，该系统对 ^{41}Ar 的 MDC 为 51 Bq/m^3[15]。采用半导体探测器和闪烁体探测器测量 ^{41}Ar 具有方法简单、技术成熟的优点，然而由于无法降低其它放射性核素对 ^{41}Ar 测量的干扰，灵敏度有限。

β-γ符合探测器依据β-γ符合法原理设计，常用塑料闪烁体（Plastic Scintillator，PS）或硅探测器测量β射线，无机闪烁体或 HPGe 测量γ射线[16–19]。β-γ符合法基于放射性核素衰变产生的β射线和γ射线的级联关系，仅记录同时产生的β射线和γ射线，可极大地减小环境放射性核素和宇宙线产生的本底，大幅度提高信噪比和探测灵敏度。然而，目前β-γ符合法在 ^{41}Ar 测量中的应用较少。西北核技术研究所的解峰等设计了 4πβ(PS)-4πγ(NaI)测量系统，利用β效率外推法实现了 ^{41}Ar 活度的绝对测量[20]。苏州大学李一秋和周冬冬等设计了由塑料闪烁体和 CsI(Tl)闪烁体组成的 4π叠层闪烁探测器系统用于惰性气体测量，采用同一光电倍增管收集两种闪烁体的信号，通过脉冲形状甄别实现信号筛选[21,22]。以上两个探测系统采用的塑料闪烁体厚度均仅 1 mm，由于 ^{41}Ar 衰变产生的β射线最大能量为 1197.99 keV，一些高能β射线会穿出塑料闪烁体在 NaI(Tl)或 CsI(Tl)闪烁体中沉积能量，导致γ射线峰探测效率降低，同时增加β-γ误符合计数。另外，解峰等设计的 4πβ(PS)-4πγ(NaI)系统可测样品体积仅 18.77 mL，目前从空气中取样分离出氩气的体积可以达到每小时百毫升以上[23,24]，为了获得较低的 MDC，应针对 ^{41}Ar 测量增大可测样品体积。

综上，气体探测器难以分辨核素类型，半导体探测器和闪烁体探测器灵敏度不够，而β-γ符合探测器可以降低本底，探测灵敏度高，本文选用β-γ符合探测器测量 ^{41}Ar 活度。由于叠层闪烁探测器测量系统对脉冲形状甄别技术要求高，并且会在进行信号甄别时额外引入误差，本文拟采用独立的β探测器和γ探测器实现符合测量。考虑到闪烁体探测器具有探测效率高、易于加工、便携等优点，本文采用塑料闪烁体探测器作

为β探测器、CsI(Tl)闪烁体探测器作为γ探测器，以实现 ^{41}Ar 高灵敏度测量为目标，通过 Geant4 模拟实现探测器结构优化。

1 MDC 优化方法

MDC 为最小可探测活度浓度，是放射性惰性气体监测系统的重要评价指标，对于β-γ符合系统，其计算公式如下

$$MDC = \frac{2.71 + 4.65\sqrt{n_B \cdot T_l}}{\varepsilon_\beta \cdot \varepsilon_\gamma \cdot \beta_{BR} \cdot \gamma_{BR} \cdot T_l \cdot} \cdot \frac{\lambda \cdot T_A}{1 - e^{-\lambda T_A}} \cdot \frac{\lambda \cdot T_C}{1 - e^{-\lambda T_C}} \cdot e^{\lambda T_P} \cdot \frac{1000}{V_{Air}} \quad (1\text{-}1)$$

其中：$n_B = \sum_i^{ROI} counts_i / T_l$，为感兴趣区（Region of interest，ROI）本底计数率，感兴趣区 $ROI = \pm 1.25FWHM(\pm 3\sigma)$，$FWHM$ 为γ射线的能量分辨率；T_l 为测量的活时间，s；ε_β 为β探测效率；ε_γ 为γ探测效率；β_{BR} 为β分支比；γ_{BR} 为γ分支比；$\lambda = Ln(2)/t_{1/2}$ 为衰减常数，s^{-1}；T_A 为测量时间，s；T_C 为取样时间，s；T_P 为样品处理时间，s；V_{Air} 为空气采样体积，m^3。

由式（1-1）可以看出，MDC 与β探测效率、γ探测效率、空气采样体积、测量时间、取样时间、以及样品处理时间等参数相关。本文基于以下假设进行分析：

（1）假设空气采样体积 V_{Air} 与探测器气体腔体积成正比；

（2）假设取样时间 T_C 与探测器气体腔体积成正比，并且满足 $T_C = 3600 * V_D / m$，其中 m 为氩气取样速率，mL/h；V_D 为探测器气体腔体积，mL;

（3）由于采用β-γ符合法可以显著降低本底，假设本底计数率很小，忽略探测器结构对本底计数率的影响，即认为 n_B 与 ε_β、ε_γ、V_D 无关；

（4）假设测量的活时间与测量时间相等，即 $T_l = T_A$。

将与探测器结构、测量时间、样品处理时间相关的项分别整理，定义以下公式

$$F_{\beta,\gamma} = \frac{1}{\beta_{BR} \cdot \gamma_{BR}} \quad (1\text{-}2)$$

$$F_{D,T} = \frac{1}{\varepsilon_\beta \cdot \varepsilon_\gamma \cdot (V_{Air}/1000)} \cdot \frac{\lambda T_C}{1 - e^{-\lambda T_C}} \quad (1\text{-}3)$$

$$F_{n,T} = \frac{2.71 + 4.65\sqrt{n_B \cdot T_l}}{T_l} \cdot \frac{\lambda T_A}{1 - e^{-\lambda T_A}} \quad (1\text{-}4)$$

$$F_P = e^{\lambda T_P} \quad (1\text{-}5)$$

可得

$$MDC = F_{\beta,\gamma} \cdot F_{D,T} \cdot F_{n,T} \cdot F_P \quad (1\text{-}6)$$

在式（1-6）中，$F_{\beta,\gamma}$ 仅与放射性核素种类有关，对于 ^{41}Ar，该值为定值；$F_{n,T}$ 主要与本底计数率及测量时间相关，对于不同的本底计数率水平，可计算出 $F_{n,T}$ 与测量时间的关系；F_P 与样品处理时间相关，为使 MDC 最小，应尽量减小样品处理时间；$F_{D,T}$ 受探测器结构的影响最大，基于前述假设，可知

$$F_{D,T} \propto \frac{1}{\varepsilon_\beta \cdot \varepsilon_\gamma \cdot V_D} \cdot \frac{3600 \cdot \lambda \cdot V_D / m}{1 - e^{-3600\lambda V_D/m}} \quad (1\text{-}7)$$

将上式右侧记为 $F_{D,T}'$，对于一定的氩气取样速率 m，$F_{D,T}'$ 取决于 ε_β、ε_γ 和 V_D。为使 MDC 最小，应使 $F_{D,T}'$ 尽量小，可通过 Geant4 模拟实现探测器结构优化。基于此，本文以 MDC 为衡量标准，首先通过 Geant4 模拟β射线在不同厚度的塑料闪烁体中的能量沉积情况，选择合适的塑料闪烁体厚度。其次，对不同气体腔体积的β探测效率、γ峰效率进行模拟。以 $F_{D,T}'$ 最小为目标，根据氩气取样速率的实际情况，选择使 MDC

最小的 CsI(Tl)闪烁体尺寸，完成探测器结构优化。此外，通过计算不同本底计数率条件下 $F_{n,T}$ 与测量时间的关系曲线，选择出合适的测量时间。

2　探测器设计与优化

2.1　Geant4 模拟结构设置

Geant4 是欧洲核子中心（CERN）开发的蒙特卡罗开源模拟程序，被广泛应用于高能物理、天体物理和空间科学、医学物理和辐射防护等领域[25]。Geant4 可以模拟粒子与物质的各种相互作用，本研究主要运用 Geant4 模拟β射线和γ射线在闪烁体探测器中的能量沉积情况。

为了提高β射线探测效率，应尽量提高探测立体角，因此塑料闪烁体采用 4π中空圆柱结构。由于本研究采用独立的β探测器和γ探测器，塑料闪烁体和 CsI(Tl)闪烁体均需要耦合光电倍增管（Photomultiplier Tube, PMT），外侧的 CsI(Tl)闪烁体设计成近 4π井型结构。塑料闪烁体、CsI(Tl)闪烁体与 PMT 组装结构示意图如图 1 所示，在模拟过程中不考虑进气管的影响。将塑料闪烁体材质设置为 BC404，气体腔内部气体设置为氩气。在两个闪烁体之间设置 0.5 mm 厚度空气和 0.5 mm 厚度铝膜，CsI(Tl)闪烁体的外侧设置 0.5 mm 厚度铝膜。

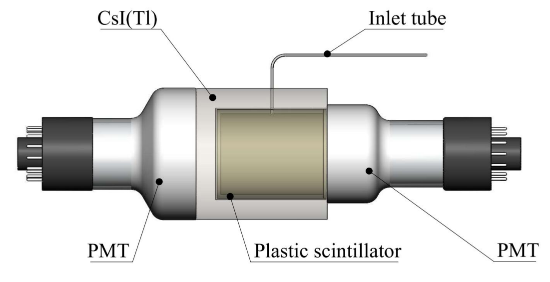


图 1 探测器结构示意图

Fig.1　Structure diagram of detector

2.2　塑料闪烁体厚度优化

塑料闪烁体的厚度会影响β射线的能量沉积情况，如果塑料闪烁体厚度太薄，高能量的β射线会穿透塑料闪烁体和铝膜，在 CsI(Tl)中沉积能量，给γ射线的探测带来干扰。如果β射线同时在塑料闪烁体和 CsI(Tl)闪烁体中沉积能量，则会增加β-γ误符合计数。基于此，有必要对β射线穿过塑料闪烁体和铝膜而沉积在 CsI(Tl)中的泄漏率进行研究。设置气体腔直径为 50 mm、高度为 71 mm、CsI(Tl)厚度为 20 mm，对 BC404 厚度从 0.1 mm 到 8 mm 进行模拟。统计 ^{41}Ar 衰变产生的β射线在 CsI(Tl)中的能量沉积情况，模拟结果如图 2 所示。随着 BC404 厚度的增加，β射线的泄漏率降低。当 BC404 厚度大于 3 mm 时，泄漏率趋于稳定。当 BC404 厚度等于 8 mm 时，泄漏率约为 0.7%，这主要是由于部分β射线在 BC404 内发生轫致辐射，产生的 X 射线穿过 BC404 和铝膜沉积在 CsI(Tl)中。

考虑到随着 BC404 厚度增加，γ射线在 BC404 中沉积能量的粒子数比例也在增加，BC404 厚度不宜过大，^{41}Ar 衰变产生的γ射线在 BC404 中沉积能量的粒子数情况如图 3 所示。选择 BC404 厚度为 3 mm，此时 ^{41}Ar 衰变β射线在 CsI(Tl)中沉积能量的粒子数比例约 0.74%，1293.6 keV γ射线在 BC404 中沉积能量的粒子数比例约 3.4%。

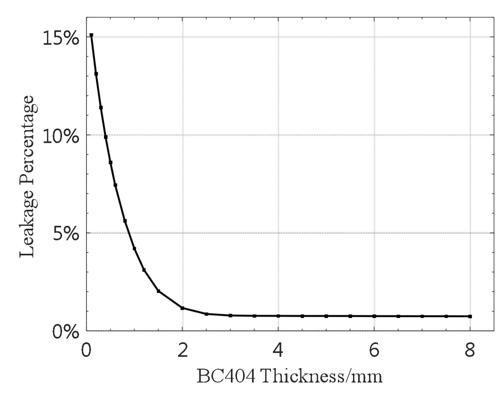


图 2 ^{41}Ar 衰变β射线泄漏率（在 CsI(Tl) 中沉积能量的粒子数量百分比）随 BC404 厚度的变化

Fig.2 The particle number percentage of deposition energy of ^{41}Ar decay β-rays in CsI(Tl) varies with BC404 thickness

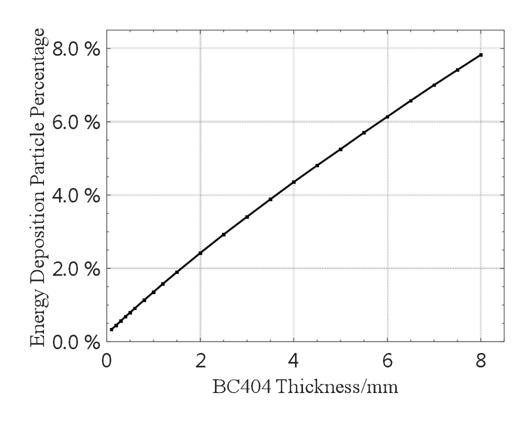


图 3 1293.6 keV γ射线在 BC404 中沉积能量的粒子数百分比随 BC404 厚度的变化

Fig.3 The particle number percentage of 1293.6 keV γ-ray in BC404 varies with BC404 thickness

2.3 探测器整体优化

CsI(Tl)的厚度主要影响γ射线的峰效率，设置气体腔直径为 50 mm、高度为 71 mm、BC404 厚度为 3 mm，运用 Geant4 对 1293.6 keV γ射线在不同厚度的 CsI(Tl)中的能量沉积情况进行模拟，高斯拟合得出γ射线峰效率随 CsI(Tl)厚度的变化曲线如图 4 所示。当 BC404 厚度和气体腔体积一定时，γ射线峰效率随 CsI(Tl)厚度的增加而增加，其增速逐渐减慢，考虑到采购加工成本，选用外径和高度均为 4 英寸的圆柱形 CsI(Tl)闪烁体。

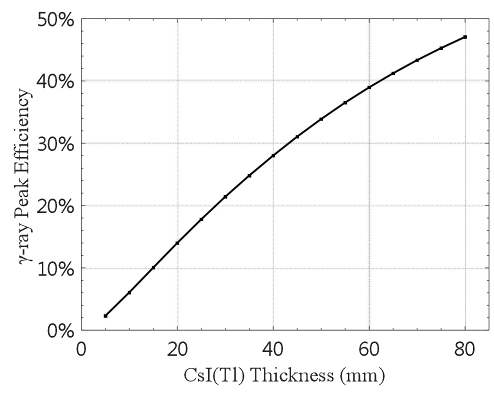


图 4 1293.6 keV γ射线峰效率随 CsI(Tl)厚度变化曲线图

Fig.4 Peak efficiency of 1293.6 keV γ-ray varies with CsI(Tl) thickness

在 BC404 厚度为 3 mm、CsI(Tl)外径和高度为 4 英寸的情况下，气体腔体积的大小会影响β探测效率和

γ峰效率。一方面，气体腔体积增大时，低能β射线在气体腔中的自吸收概率增大，使得β射线的探测效率降低；另一方面，气体腔体积增大会使得 CsI(Tl)厚度减小，γ射线的峰效率降低。由于β探测效率、γ峰效率和气体腔体积均与 MDC 相关，本节根据式（1-7）对探测器结构进行整体优化。运用 Geant4 对不同的气体腔直径进行模拟，保持 CsI(Tl)闪烁体侧面和端面的厚度相等，气体腔直径、高度与体积同步改变，三者一一对应。分别将粒子源设置为 ^{41}Ar 衰变产生的β射线和 1293.6 keV γ射线，模拟能量沉积情况。

模拟结果表明，当气体腔体积小于 300 mL 时，β射线在塑料闪烁体中的探测效率大于 95%，自吸收效应对β探测效率的影响较小。通过计算β探测效率、γ峰效率和气体腔体积，设定不同的氩气取样速率，得出 $F_{D,T}'$ 随气体腔直径变化曲线如图 5 所示。对于一定的氩气取样速率，随着探测器气体腔直径和高度的增加，$F_{D,T}'$ 先降低后升高。这主要是由于随着气体腔直径和高度的增加，一方面，气体腔体积快速增加使 $F_{D,T}'$ 迅速减小；另一方面，由于 CsI(Tl)闪烁体厚度降低，γ峰效率降低，同时取样时间随气体腔体积增加，使得 $F_{D,T}'$ 增大。从不同的氩气取样速率来看，取样速率越快，$F_{D,T}'$ 的最小值越小，但当取样速率已经较大时，进一步提高取样速率对降低 $F_{D,T}'$ 的影响较小。考虑到目前氩气取样速率约 600 mL/h，选择气体腔直径为 63 mm，此时 CsI(Tl)厚度为 15.3 mm，气体腔体积为 247.2 mL，以此为优化后的几何尺寸。

此外，阈值和铝膜厚度也会对探测器的性能带来影响。阈值的设置会降低β射线由于韧致辐射而泄露到 CsI(Tl)中的计数率，并且影响β探测效率和γ峰效率，应根据实验中的阈值设置对 Geant 模拟数据进行处理，以使模拟结果和实验测试结果更接近。由于 3 mm 厚度塑料闪烁体对β射线的探测效率很高，铝膜厚度主要影响 CsI(Tl)对γ射线的峰效率。Geant4 模拟结果表明，当两闪烁体之间的铝膜厚度从 0.05 mm 增加至 1.0 mm 时，γ峰效率下降约 0.3%。因此，可适当减小两闪烁体之间的铝膜厚度以提高γ射线的探测效率。

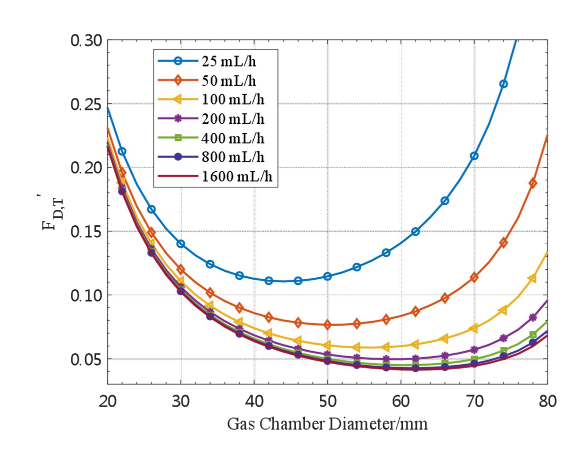


图 5 不同氩气取样速率下 $F_{D,T}'$ 随气体腔直径变化曲线图

Fig.5 The curve of $F_{D,T}'$ with various gas chamber diameter under different argon sampling rates

3 结果与讨论

3.1 探测器能谱分析

当 BC404 厚度为 3 mm，CsI(Tl)厚度为 15.3 mm，气体腔直径（塑料闪烁体内径）为 63 mm 时，将粒子源设置为 ^{41}Ar，运用 Geant4 进行模拟，统计 ^{41}Ar 在 BC404 和 CsI(Tl)中的能量沉积情况，绘制 ^{41}Ar 在 CsI(Tl)闪烁体中的能量沉积图如图 6 所示，在 BC404 和 CsI(Tl)中的能量直方图如图 7 所示，图中未进行能量展宽。图 7 中，区域①对应的事件为 1.2936 MeV γ射线（分支比 99.1%）能量全部沉积在 CsI(Tl)中，β射线能量沉积在 BC404 中；区域②对应的事件为 1.6772 MeV γ射线（分支比 0.052%）能量全部沉积在 CsI(Tl)中，β射线能量沉积在 BC404 中；区域③的形成主要是由于γ射线在 CsI(Tl)中发生一次或多次康普顿散射，反冲电子在 CsI(Tl)中沉积能量，部分散射光子射出 CsI(Tl)；当γ射线在 BC404 中发生康普顿散射时，反冲电子（0~1.08 MeV）在 BC404 中沉积能量，如果散射光子（0.21~1.29 MeV）在 CsI(Tl)中沉积能量，此类事件将位于区域④。

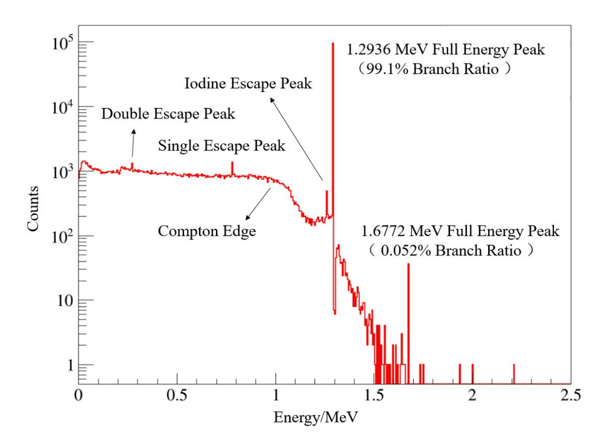


图 6 Geant4 模拟 ^{41}Ar 在 CsI(Tl)闪烁体中的能量沉积图

Fig.6 The energy deposition diagram of ^{41}Ar in CsI(Tl) scintillator

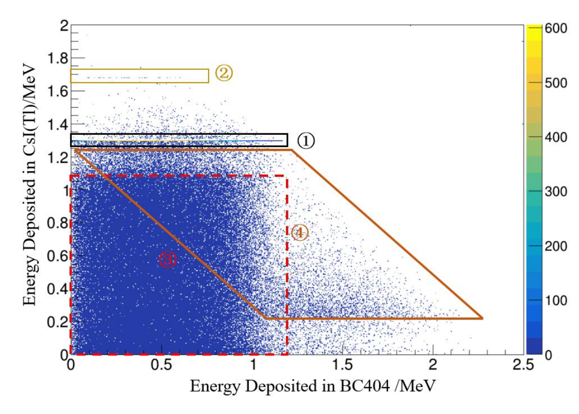


图 7 Geant4 模拟 ^{41}Ar 在 BC404 和 CsI(Tl)中的能量沉积直方图

Fig.7 The energy deposition histogram of ^{41}Ar in BC404 and CsI(Tl)

3.2 测量系统 MDC 分析

对于不同的本底计数率，可根据式（1-4）得出 $F_{n,T}$ 随测量时间的变化曲线如图 8 所示。由图可知，本底计数率的量级对 $F_{n,T}$ 值影响很大，为了降低 MDC，可采取屏蔽措施尽量降低本底计数率。$F_{n,T}$ 随测量时间的增加迅速下降，其下降速度逐渐减慢并在测量时间较长时出现上升趋势。当本底计数率为 1×10^{-3}~1×10^{0} cps 时，测量时间大约 200 分钟为宜；当本底计数率低于 1×10^{-3} cps 时，可适当增加测量时间以降低 MDC，但是由于测量时间大于 200 分钟后 $F_{n,T}$ 下降速度缓慢，收益较低。由于β-γ符合法可显著降低本底，假设本文所设计的探测器本底计数率为 5×10^{-3} cps，测量时间为 200 分钟时，$F_{n,T}$ 的数值约为 5.69×10^{-3}。根据 ^{41}Ar 衰变分支比，计算出 $F_{\beta,\gamma}$ 为 1.009。优化后的探测器气体腔体积为 247.2 mL，结合氩气取样速率可知取样时间大约需 25 分钟。以氩气回收率为 60%进行计算，$F_{D,T}$ 的数值为 2.48×10^{5}；为使 MDC 尽量小，气体样品冷却处理时间应尽量小，假设为 30 分钟，则 F_p 的数值为 1.209。由式（1-6）计算出本文所设计的探测器在标准大气压下 MDC 约 1.7 Bq/m^3。由于 MDC 受多种因素影响，实测值会与本计算值有一定差别，此值可作为参考值。总体来说，本文所设计的探测器性能较优。

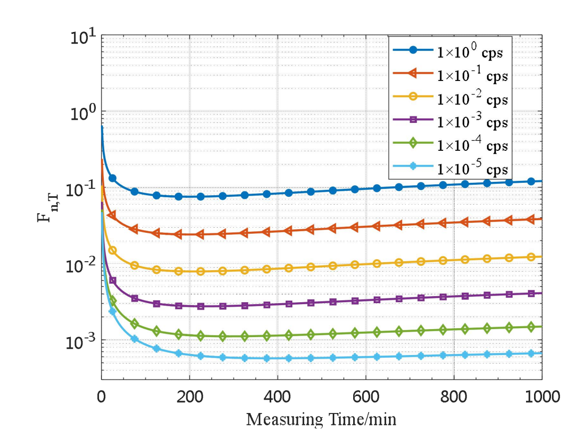


图 8 不同本底计数率条件下 $F_{n,T}$ 随测量时间变化曲线图

Fig.8 The curve of $F_{n,T}$ with measurement time under different background counting rates

4 总结

为了实现 ^{41}Ar 高灵敏度测量，本文研制了由塑料闪烁体和 CsI(Tl)闪烁体组成的β-γ符合探测器。通过 Geant4 模拟，综合衡量探测器气体腔体积、β探测效率、γ探测效率和取样时间的影响，以 MDC 最小为优化目标对探测器结构进行优化。模拟结果表明 3 mm 厚度的塑料闪烁体可吸收大部分 ^{41}Ar 衰变产生的β射线能量，仅有约 0.74%的韧致辐射能量沉积在 CsI(Tl)中，对γ射线的探测影响较小。对于外径和高度均为 101.6 mm 的 CsI(Tl)闪烁体，以氩气取样速率为 600 mL/h 计算，当气体腔直径为 63 mm、CsI(Tl)厚度为 15.3 mm、气体腔体积为 247.2 mL 时 MDC 最小。当测量时间为 200 分钟、样品冷却处理时间为 30 分钟、本底计数率为 5×10^{-3} cps 时，本文优化后的探测器对 ^{41}Ar 的 MDC 约为 1.7 Bq/m^3。本文采用的探测器结构优化方法可应用于其它放射性气体探测器结构设计。然而，本文未考虑探测器结构对本底计数率的影响，这可作为进一步研究的方向。

作者贡献说明

冯亚洁负责文献调研、Geant4 模拟分析和论文撰写；张瑞芹和牛亚洲指导 Geant4 模拟分析、并对论文初稿进行修改完善；李奇提出以 MDC 为探测器结构优化目标的建议，并审核论文；佟立丽和王世联负责审核、把关论文的科学性、严谨性；赵允刚、樊元庆和张新军审核论文，提出了宝贵的修改意见。

参考文献

1 Nicholson A D, Archer D E, Garishvili I, *et al.* Characterization of gamma-ray background outside of the High Flux Isotope Reactor[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2018, **318**(1): 361-367. DOI: 10.1007/s10967-018-6097-5.

2 米爱军, 王晓霞, 王炳衡, 等. 离散纵标输运计算方法在压水堆核电厂 ^{41}Ar 活化源项分析中的应用[J]. 原子能科学技术, 2013, **47**(S1): 179-183. DOI: 10.7538/yzk.2013.47.S0.0179.

MI Aijun, WANG Xiaoxia, WANG Bingheng, *et al.* Application of discrete ordinates transport calculation methods in analysis of activated ^{41}Ar source term in PWR NPPs[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2013, **47**(S1): 179-183. DOI: 10.7538/yzk.2013.47.S0.0179.

3 Mohamed Zin M R, Ramli S, Abdul Mutalib R, *et al.* The prediction of ^{41}Ar radionuclide releases to the neighboring environment during operation of TRIGA PUSPATI Reactor[J]. Journal of Radiation and Nuclear Applications, 2020, **5**(3): 243-247. DOI: 10.18576/jrna/050312.

4 Hoq M A, Soner M A M, Rahman A, *et al.* Estimation of ^{41}Ar activity concentration and release rate from the TRIGA Mark-II research reactor[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2016, **153**: 68-72. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2015.12.005.

5 Jones B, Burns G J, Cavanagh H V, *et al.* Unexpected ^{13}N concentrations in ISIS synchrotron room air[J]. Applied Radiation

and Isotopes, 2022, 182: 110139. DOI: 10.1016/j.apradiso.2022.110139.

6 Latifah R, Bunawas, Noor J A E. The estimation of occupational dose in 15 MV varian clinac iX room by Argon-41 as an activation product of photoneutron[J]. Journal of Physics: Conference Series, 2018, **997**: 012027. DOI: 10.1088/1742-6596/997/1/012027.

7 Firestone R B. Table of Isotopes[M]. 1998, 8th ed.

8 Chan I, Liu J, Tran H. Evaluation and measurements of radioactive air emission and off-site doses at SLAC[J]. Health Physics, 2013, **105**(2 Suppl 2): S115-118. DOI: 10.1097/HP.0b013e318292c4e6.

9 Hoq Md A, Soner Md A M, Salam Md A, *et al.* Experimental study of ^{41}Ar activity release rate from the Bangladesh Atomic Energy Commission TRIGA research reactor[J]. International Journal of Nuclear Energy Science and Technology, 2020, **14**(1): 71. DOI: 10.1504/IJNEST.2020.108806.

10 春玉卿, 刘乃荣. 测量 ^{41}Ar 电离室的标定[J]. 原子能科学技术, 1976, **10**(1): 98-101. DOI: 10.7538/yzk.1976.10.01.0098.
CHUN Yuqing, LIU Nairong. Calibration of measuring ^{41}Ar ionization chamber. Atomic Energy Science and Technology, 1976, **10**(1): 98-101. DOI: 10.7538/yzk.1976.10.01.0098.

11 研究性重水反应堆防护组. 研究性重水反应堆排出 ^{41}Ar 的测量分析[J]. 辐射防护, 1981, **1**(5): 30-33+46. DOI: CNKI:SUN:FSFH.0.1981-05-004.
The Radiation Protection Group for the Heavy Water Research Reactor. Measurement of discharged ^{41}Ar from the heavy water reactor[J]. Radiation Protection, 1981, **1**(5): 30-33. DOI: CNKI:SUN:FSFH.0.1981-05-004.

12 Kovar P, Dryak P. Gaseous standards preparation with the radionuclide Ar-41 for stack monitors calibration and verification in nuclear facilities[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2008, **66**(6-7): 796-798. DOI: 10.1016/j.apradiso.2008.02.069.

13 Jasiulionis R, Vyčinas L, Rožkov A. In situ study of the ^{41}Ar plume released from the Ignalina NPP[J]. Open Physics, 2008, **6**(4). DOI: 10.2478/s11534-008-0118-x.

14 Krishnakumar D N, Somayaji K M, Venkatesan R, *et al.* Development and applications of energy-specific fluence monitor for field monitoring[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2011, **69**(7): 1039-1045. DOI: 10.1016/j.apradiso.2011.01.042.

15 LI Huibin, LEI Weiguo, FENG Tiancheng, *et al.* A NaI(Tl)-based radioactive noble-gas monitoring system used for radiation monitoring[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2020, **163**: 109230. DOI: 10.1016/j.apradiso.2020.109230.

16 李奇, 王世联, 赵允刚, 等. β-γ符合系统β探测器能量和能量分辨率刻度[J]. 现代应用物理, 2021, **12**(4): 040203.
LI Qi, WANG Shilian, ZHAO Yungang, *et al.* Energy and resolution calibration of β detector for β-γ coincidence system[J]. Modern Applied Physics, 2021, **12**(4): 040203.

17 Li Q, Zhao Y G, Fan Y Q, *et al.* Characterization of a β-γ coincidence system comprising a plastic scintillator and HPGe detector for radioxenon measurements under the CTBT[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2023, **1053**: 168358. DOI: 10.1016/j.nima.2023.168358.

18 Le Petit G, Cagniant A, Morelle M, *et al.* Innovative concept for a major breakthrough in atmospheric radioactive xenon detection for nuclear explosion monitoring[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2013, **298**(2): 1159-1169. DOI: 10.1007/s10967-013-2525-8.

19 Le Petit G, Cagniant A, Gross P, *et al.* SpalaxTM new generation: A sensitive and selective noble gas system for nuclear explosion monitoring[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2015, **103**: 102-114. DOI: 10.1016/j.apradiso.2015.05.019.

20 解峰, 李雪松, 代义华. β效率外推法绝对测量 ^{41}Ar 的放射性活度[C].中国核学会核化工分会 2014 学术交流年会论文集. 2014: 487-494.

21 李一秋, 杨翠萍, 张保国, 等. 放射性惰性气体实时测量装置的设计与模拟研究[J]. 核技术, 2019, **42**(4): 040401. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.040401.
LI Yiqiu, YANG Cuiping, ZHANG Baoguo, *et al.* Design and simulation study of an online activity measuring detector for radioactive noble gases[J]. Nuclear Techniques, 2019, **42**(4): 040401. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.040401.

22 周冬冬, 尤思梅, 辛杰, 等. 放射性惰性气体 4π叠层探测器研制[J]. 核技术, 2020, **43**(5): 050401. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2020.hjs.43.050401.
ZHOU Dongdong, YOU Simei, XIN Jie, *et al.* Development of a 4π phoswich detector for measuring radioactive insert gases[J]. Nuclear Techniques, 2020, **43**(5): 050401. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2020.hjs.43.050401.

23 Riedmann R A, Purtschert R. Separation of argon from environmental samples for Ar-37 and Ar-39 analyses[J]. Separation and Purification Technology, 2016, **170**: 217-223. DOI: 10.1016/j.seppur.2016.06.017.

24 闫钊通, 唐元明, 王红侠, 等. 基于变压吸附法的大气中氩室温分离方法[J]. 核化学与放射化学, 2013, **35**(3): 151-155. DOI: 10.7538/hhx.2013.35.03.0151.

YAN Zhaotong, TANG Yuanming, WANG Hongxia, *et al.* Investigation of Argon Separation in the Atmosphere at Room Temperature Based on Pressure Swing Adsorption[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2013, **35**(3): 151-155. DOI: 10.7538/hhx.2013.35.03.0151.

25 Allison J, Amako K, Apostolakis J, *et al.* Recent developments in Geant4[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2016, **835**: 186-225. DOI: 10.1016/j.nima.2016.06.125.